

Abteilung Strahlenschutz
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH
des Landes Nordrhein-Westfalen

**QUALITATIVE UND QUANTITATIVE GAMMA-ANALYSE
NIEDRIGER AKTIVITÄTEN NACH DER GRAUKEILMETHODE**

von
R. Tzschaschel

Jül - 40 - ST

März 1962



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 40

Abteilung Strahlenschutz Jüli – 40 – ST

Dok.: GAMMA RADIATION - ANALYSIS * DK 539.166.164

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich,
Jülich, Bundesrepublik Deutschland



Qualitative und quantitative Gamma-Analyse niedriger Aktivitäten nach der Graukeilmethode

Von R. Tzschaschel

SONDERDRUCK AH 257

TELEFUNKEN-ZEITUNG · JAHRGANG 34 · SEPT. 1961 · HEFT 133

Qualitative und quantitative Gamma - Analyse niedriger Aktivitäten nach der Graukeilmethode

Von R. Tzschaschel *)

Telefunken hat einen Impulshöhenanalysator entwickelt, der zur Analyse der Spektren von Kernstrahlungen dient und die Identifizierung von γ -strahlenden Isotopen ermöglicht. Er arbeitet wahlweise nach dem Einkanal- oder nach dem Graukeilverfahren. Kommerzielle Geräte für das sehr einfache Graukeilverfahren standen bisher nicht zur Verfügung; man kann bei dieser Methode ebenso schnell arbeiten wie bei dem sehr viel aufwendigeren und teureren Vielkanalverfahren, so daß sie sich besonders für Messungen von Isotopen mit kurzer Halbwertszeit und für Messungen sehr schwacher Aktivitäten empfiehlt. Im folgenden Aufsatz berichtet Herr Dr. Tzschaschel über seine Erfahrungen mit der Graukeilspektroskopie bei der Messung sehr niedriger Aktivitäten. Wir beabsichtigen, in einem späteren Heft dieser Zeitschrift ausführlich über die Technik der Kernstrahlenspektroskopie zu berichten.

Die Schriftleitung

1. Einleitung

Vor der Inbetriebsetzung eines Reaktors und vor Beginn von Arbeiten mit anderen stärkeren Strahlenquellen ist es das Ziel der Strahlenüberwachung, den Pegel der natürlichen Aktivität auf dem Gelände des Forschungszentrums zu ermitteln. Im Anschluß daran muß an Hand der so gewonnenen Daten laufend kontrolliert werden, ob durch das Arbeiten mit den Reaktoren oder anderen Strahlenquellen der Strahlenpegel im Forschungszentrum oder in seiner Umgebung steigt. Es liegt also in der Aufgabenstellung der Umgebungsüberwachung begründet, daß man im wesentlichen bei sehr kleinen Zählraten in der Gegend des Nulleffektes messen muß. Unter dem Nulleffekt einer Zählordnung ist dabei die Impulsrate zu verstehen, die sich aus den Anteilen der kosmischen Strahlung, einer Gammastrahlung aus dem Boden und aus der Strahlung der Radon- und Thoronfolgeprodukte in der bodennahen Atmosphäre zusammensetzt. Bei der Umgebungsüberwachung findet man auch den aus Kernwaffenversuchen stammenden Fallout. Man kann ihn benutzen, um die Brauchbarkeit der verwendeten Meßverfahren zum Nachweis extrem kleiner Aktivitäten zu testen. Die dabei benutzten Proben besitzen „ γ -Aktivitäten“ — hier bezogen auf ^{40}K als Eichstandard — in der Größenordnung von einigen $10^{-6} \dots 10^{-4} \mu\text{C}$ je Gramm Substanzmenge**).

An anderer Stelle [1] [2] wurde bereits darauf hingewiesen, daß sich das Graukeilspektrometer Telefunken MS Str. 531 besonders vorteilhaft zur γ -spektrometrischen Untersuchung von Proben sehr geringer Radioaktivität verwenden läßt. Diese außerordentlich geringen Aktivitäten lassen sich damit unabhängig von den Auswertemethoden mit einer Unsicherheit von etwa 3% bestimmen. Ähnlich genaue Meßergebnisse liefert auch das Verfahren einer Kalibrierung der Aktivitätskoordinate mit einer Verdünnungsreihe radioaktiven Jods, das ebenfalls diskutiert wird. Die Gammaskpektrometrie nach der Graukeilmethode stellt somit ein Verfahren dar, dessen Ergebnisse hinsichtlich der Untersuchung schwach aktiver Strahlenquellen mit denen der mehrfach teureren Vielkanalspektrometrie durchaus vergleichbar sind.

2. Vergleiche zwischen Einkanal- und Graukeilspektrogrammen im niedrigen Aktivitätsniveau

Der vorliegende Bericht ist das Resultat einer einjährigen Erfahrung mit dem Graukeilspektrometer bei der Umgebungsüberwachung der Kernforschungsanlage Jülich. Da in der zur Zeit noch im Aufbau befindlichen Anlage nicht radioaktiv gearbeitet wird, sind die folgenden Ergebnisse, mit Ausnahme der in den Proben vorhandenen natürlich radioaktiven Substanzen, ausschließlich

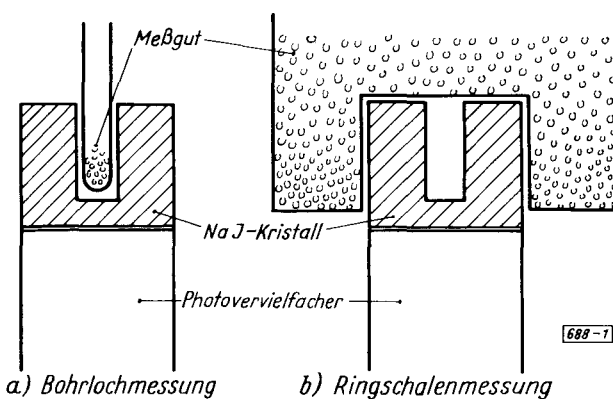
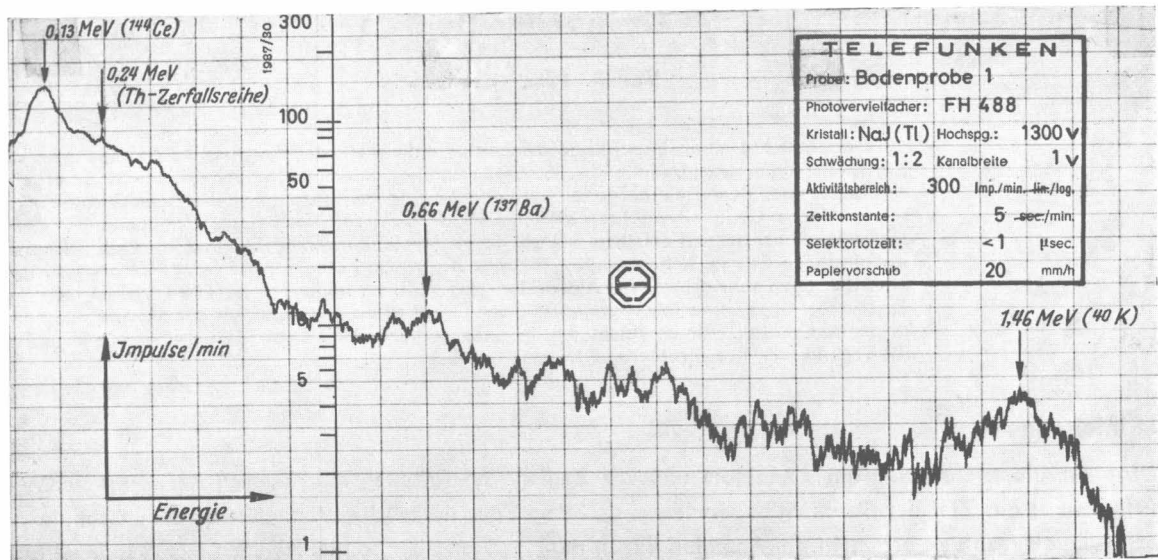


Bild 1: Szintillationsmeßköpfe für Gammastrahlung (schematisch)

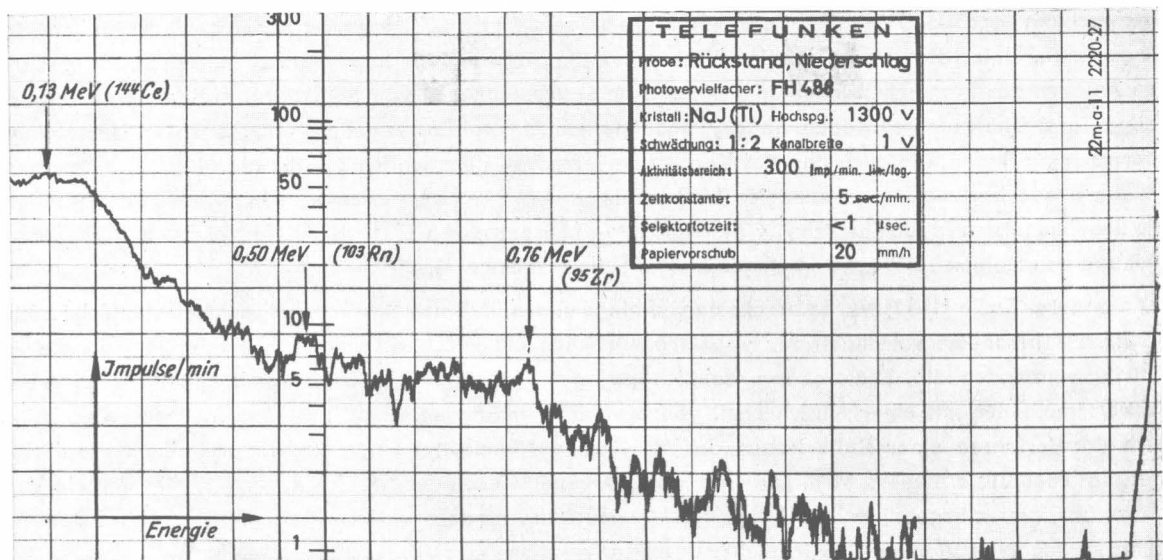
*) Mitarbeiter der Abteilung Strahlenschutz der Kernforschungsanlage Jülich.

**) Die Aktivitätseinheit $1 \mu\text{C} = 1$ Mikrocurie bedeutet $3,7 \cdot 10^4$ Zerfälle/s. Sie entspricht der Aktivität von einem Mikrogramm Radium. Im strengen Sinne kann man von der hier genannten „ γ -Aktivität“ nicht sprechen, da die Zerfallsschemata der verschiedenen radioaktiven Elemente (Nuklide) oft sehr komplex sind. Die Apparatur wurde nun mit Kaliumchlorid als Eichstandard kalibriert. Im natürlichen Kalium ist das Kaliumisotop ^{40}K mit 0,118 Promille grundsätzlich enthalten. Letzteres ist ein β/γ -Strahler mit einer Halbwertszeit von $1,3 \cdot 10^9$ a, wobei die γ -Strahlung ihrerseits wieder 11% der Strahlenemission ausmacht. Im vorliegenden Fall ist es also gerechtfertigt, eine „auf ^{40}K als Eichstandard bezogene γ -Aktivität“ der Meßpräparate anzugeben.

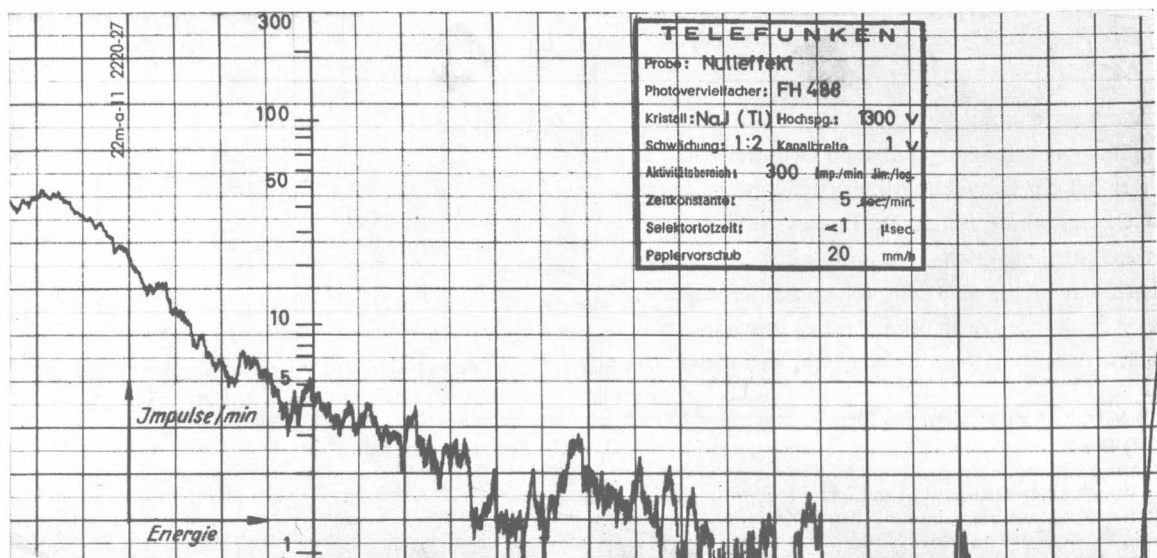
Bild 2: Einkanalspektren



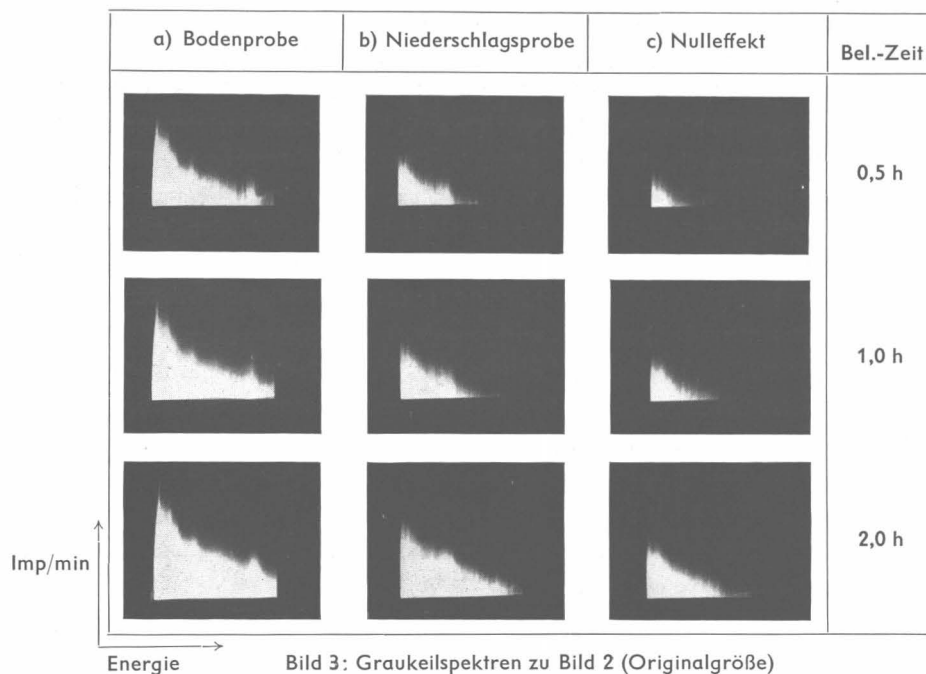
a) einer Bodenprobe



b) einer Niederschlagsprobe



c) des Nulleffektes



früheren oder neueren Fallout-Nukliden zuzuordnen, die ihren Ursprung in Kernwaffentesten außerhalb der Bundesrepublik haben.

Das Prinzip der Graukeilspektrometrie und die Meßmethodik wurden bereits von K. Fränz [3] und J. Schulz [4] beschrieben, so daß an dieser Stelle einige Bemerkungen über den Detektor und das photographische Verfahren genügen. Als Detektor wurde der Szintillationszähler FH 488/Z 20 (NaJ (TI), 60 × 60 mm) in großer Bleikammer FH 412 verwendet, da sich mit diesem Gerät sowohl Eindampf- und Ascherückstände in Bohrlochkristallen als auch Bodenproben in Ringschalen untersuchen lassen. In Bohrlochkristallen werden vorzugsweise Präparate sehr geringer Substanzmenge gemessen, während sich in Ringschalen größere Probenmengen ohne vorherige Aufbereitung untersuchen lassen (Bild 1).

Die Graukeilspektren wurden mit einer Kleinbildkamera auf Agfa-Agepe-Dokumentenfilm aufgenommen, die Filme selbst in Agfa Dokumol 5 min bei 20° C entwickelt.

Die Bilder 2 und 3 zeigen eine Gegenüberstellung von Einkanal- und Graukeilspektren gleicher Proben im Vergleich zum Nulleffekt. Verwendet wurden je eine Boden- und eine Niederschlagsprobe, deren Aktivitäten aus Tabelle 1 zu entnehmen sind.

Die Einkanalspektren (Bild 2) wurden mit langsamster Vorschubgeschwindigkeit (20 mm/h) aufgenommen, erforderten also für jede Messung eine Zeit von 12,5 Stunden. Die entsprechenden Graukeilspektren (Bild 3) wurden mit drei verschiedenen Belichtungszeiten von 1/2 bis 2 Stunden hergestellt. Im Spektrum der Bodenprobe ließen sich vier, im Spektrum der Niederschlagsprobe drei Nuklide ermitteln. Lage und Energie der Gammalinien sind aus den Hinweisfeilen im Bild 2 zu ersehen. In der Bodenprobe sind die Gammalinien 0,24 MeV (Strahler der Th-Zerfallsreihe) und 1,46 MeV (⁴⁰K) natürlichen Ursprungs, die Linien 0,13 MeV (¹⁴⁴Ce) und 0,66 MeV (¹³⁷Ba) sind dagegen Fallout-Bestandteile. Die drei Linien der Niederschlagsprobe von 0,13 MeV (¹⁴⁴Ce), 0,50 MeV (¹⁰³Ru) und 0,76 MeV (⁹⁵Zr) stammen ausschließlich aus dem Fallout.

Bei kritischer Betrachtung der Einkanalspektren mit besonderer Beachtung des Ordinatenmaßstabes muß man feststellen, daß die eindeutige Zuordnung gewisser Spitzen im Schreibdiagramm zu bestimmten Strahlen-

Tabelle 1
Untersuchungsdaten einer Boden- und einer Niederschlagsprobe
(Messung Oktober 1960)

Probenart (Entnahmedatum)	Gewicht g	Messung in	$n - n_0^{**})$ Impulse/min.	Aktivitäten der Gesamtprobe	
				μC	$\gamma\text{-Zerfälle/min.}$
Boden (Febr. 1960)	1074	Ringschale	1240	$6,7 \cdot 10^{-3}$	$14,9 \cdot 10^3$
Niederschlag (März 1960)	1,03 ^{*)}	Bohrloch	254	$0,21 \cdot 10^{-3}$	$0,47 \cdot 10^3$

^{*)} Eindampfdruckstand von 13 l Wasser.

^{**) Nulleffekt $n_0 = 390$ Imp/min, $n =$ Zählrate mit Präparat.}

energien nicht einfach ist, im vorliegenden Fall sogar nahezu unmöglich wäre, wenn man die Graukeilspektren nicht zum Vergleich heranziehen könnte. Besonders im Bereich niedriger Impulsraten zwischen 5 und 10 Imp/min sind statistische Schwankungen der Impulsrate und echte Spitzen schwer auseinanderzuhalten. Die Ermittlung der soeben genannten Nuklide erfolgte daher auch über die Auswertung der Graukeilspektrogramme. Wie Bild 3 zeigt, heben sich die einzelnen Spitzen im Graukeilspektrogramm weitaus deutlicher aus dem allgemeinen Untergrund heraus. In dieses Bild wurden allerdings die in Bild 2 gezeigten Hinweispfeile nicht einkopiert, da zum Zwecke der Gegenüberstellung zweier schwach strahlender Proben zum Nulleffekt einerseits und der Veranschaulichung des Einflusses der Belichtungszeit auf der anderen Seite die Spektren in Originalgröße dargestellt wurden. (Man vergleiche hierzu aber die vergrößerten Spektren des Bildes 4, bei denen es sich um ähnliche Proben handelt.)

Interessant ist noch die Feststellung, daß der Informationsgehalt der Spektren bei einer Steigerung der Belichtungszeit von 0,5 auf 2 Stunden nicht entscheidend zunimmt, so daß Graukeilspektrogramme eines Meßgutes der hier vorliegenden Aktivitäten mit 1 bis 1½ Stunden ausreichend exponiert sind.

Dieses Beispiel, das aus einer Vielzahl von ähnlichen Versuchen herausgegriffen wurde, zeigt in bezug auf die vorliegende Aufgabenstellung, daß mit dem Graukeilverfahren Ergebnisse zu erzielen sind, die sich mit den Ergebnissen der Vielkanalspektrometrie durchaus vergleichen lassen. In Tabelle 2 und in Bild 4 wird diese Feststellung noch durch weitere Beispiele ergänzt.

Die in den Spektren von Bild 4 ermittelten Photolinien entsprechen den Nukliden der Tabelle 3.

3. Energieeichung, Auswertung und Darstellung der Spektren

Für eine Auswertung der Graukeilspektrogramme ist es in den meisten Fällen ausreichend, eine Energieeichung durchzuführen, da die häufigsten Aufgaben der Praxis darauf hinauslaufen, unbekannte Nuklide qualitativ zu ermitteln. Da derartige Analysen oftmals schnell durchgeführt werden müssen — als Beispiel sei hier der Einsatz des Spektrometers im betrieblichen Strahlenschutz, in Anlagen zur Reinigung radioaktiv verseuchter Abwässer und ähnlichen Dingen genannt — ist es zweckmäßig, die Spektren unter Umgehung des

Positivprozesses direkt durch Projektion auf Millimeterpapier auszuwerten, wie es bereits von J. Schulz [4] vorgeschlagen wurde.

In Bild 5 wurde das Ergebnis einer derartigen Energieeichung mit einigen bekannten Eichstrahlern zusammengestellt. Dabei wurden von verschiedenen radioaktiven Strahlern, deren Symbole links der Ordinatenachse eingetragen sind, Graukeilspektren aufgenommen und — wie im nächsten Abschnitt beschrieben — ausgewertet. Bei vorgegebener Hochspannung am Szintillationsmeßkopf (Detektorspannung) und vorgegebener Eingangsschwächung des Impulshöhenanalysators ergibt sich eine bestimmte Eichgerade (Beispiel: Gerade 4, Detektorspannung 1300 Volt, Eingangsschwächung 1:2). Variiert man die Hochspannung bei konstanter Eingangsschwächung, erhält man die im vorliegenden Bild gezeigte Geradenschar. Eine ähnliche Geradenschar resultiert auch aus einer Variation der Eingangsschwächung bei konstanter Detektorspannung. Welche der beiden Va-

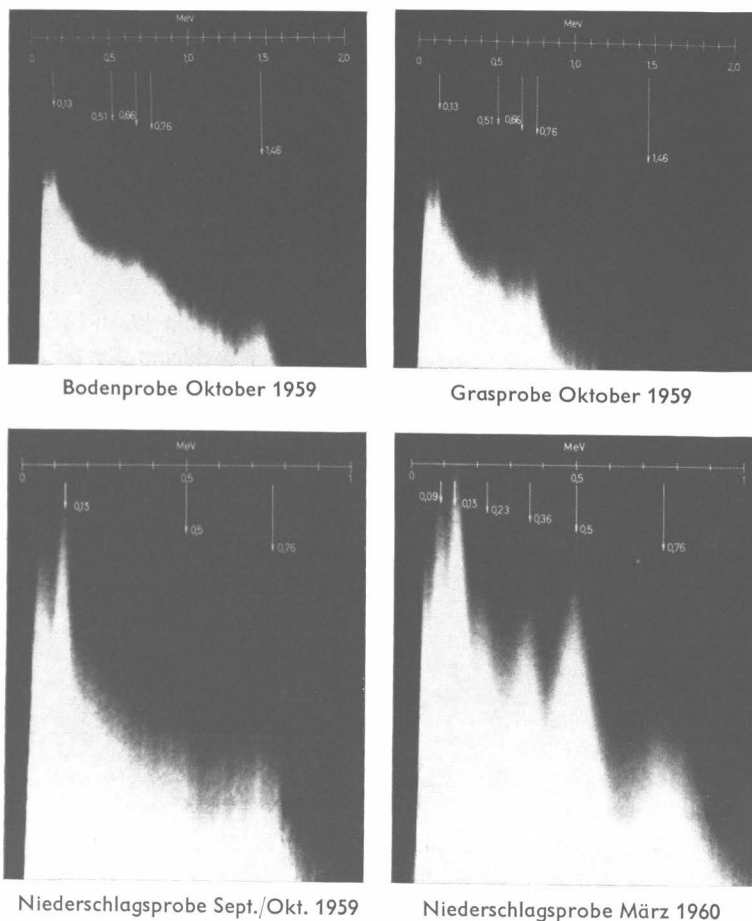


Bild 4: Verschieden Graukeilspektren im niedrigen Aktivitätsniveau

rianten gewählt wird, ist grundsätzlich gleichgültig, sofern man bei Variation der Hochspannung im vorgeschriebenen Spannungs-Arbeitsbereich des Photo-Vervielfachers bleibt. Auf der anderen Seite ist die Festlegung einer solchen Geradenschar aber zweckmäßig, denn man kann, wenn auf bestimmte Strahler untersucht werden soll, vor Beginn einer Analyse entscheiden, welcher „Meßbereich“ in Frage kommt. Vermutet man im Präparat Strahler mit geringen Gammaenergien, wird man z. B. im Bereich der Eichgeraden 5–7, im Falle hoher Gammaenergien im Bereich der Geraden 1 oder 2 arbeiten. Allerdings hat eine derartige Geradenschar zunächst auch nur wieder orientierenden Charakter, d. h. es ist unumgänglich, jede Messung unbekannter Substanzen durch Aufnahme bestimmter Eichstrahler zu ergänzen, denn selbst wenn man die Betriebsbedingungen durch die gewählte Detektorspannung und Schwächung scheinbar konstant hält, können im Gerät (z. B. in den Eigenschaften des Photo-Vervielfachers) unkontrollierbare Dinge auftreten, die eine Veränderung des Energiemaßstabes bedingen, wie auch experimentell festgestellt wurde. Da der Primärversuch (siehe Bild 5) aber die strenge Linearität aller Eichgeraden ergeben hat, genügt es in den meisten Fällen, für alle weiteren Eichungen z. B. das Nuklid ^{22}Na zu verwenden, das mit seinen beiden Linien 0,51 MeV und 1,28 MeV die erforderliche Eichgerade festlegt.

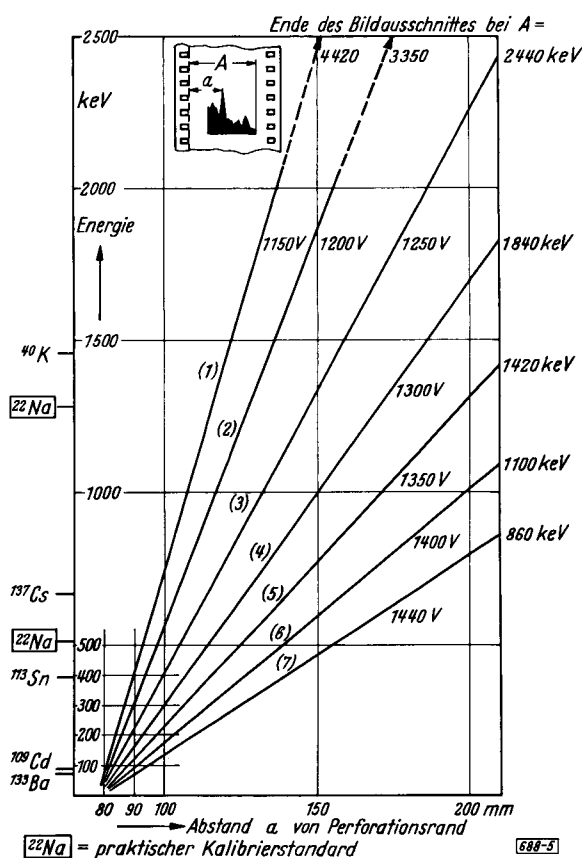


Bild 5: Eichkurven für Graukeilspektren bei vorgegebener Schwächung in Abhängigkeit von der Detektorspannung U_D als Parameter

Die Technik der Auswertung erfolgte so, daß das Negativ mit 12-facher Vergrößerung direkt auf Millimeterpapier projiziert wurde. Als Bezugslinie für die Längenmessung a eignet sich die Innenkante der Filmperforation besonders gut (siehe Skizze auf Bild 5), da sich das Linienraster des Millimeterpapiers sehr genau anlegen läßt. Es bestehen auch keine Bedenken, die Bezugslinie außerhalb des eigentlichen Spektrums zu legen, denn eine Versuchsreihe mit zwanzigmal aufeinanderfolgenden Aufnahmen des Na-Spektrums ergab für die Linie

Tabelle 2
Untersuchungsdaten der Graukeilspektren von Bild 4

Probenart (Entnahmedatum)	Gewicht g	Messung in (am)	$n - n_0$ Impulse/min.	Aktivitäten der Gesamtprobe		Belichtungszeit des Spektrums (h)
				μC	γ -Zerfälle/min.	
Boden (Okt. 1959)	126	Ringschale (5. 1. 1960)	234	$1,3 \cdot 10^{-3}$	$2,9 \cdot 10^3$	2
Gras (Okt. 1959)	76	Ringschale (5. 1. 1960)	300	$1,6 \cdot 10^{-3}$	$3,6 \cdot 10^3$	2
Niederschlag (Aug./Sept. 1959)	1,9	Bohrloch (5. 1. 1960)	460	$0,4 \cdot 10^{-3}$	$0,82 \cdot 10^3$	1,5
Niederschlag (März 1960)	1,03	Bohrloch (8. 3. 1960)	3370	$2,7 \cdot 10^{-3}$	$6 \cdot 10^3$	0,5

Tabelle 3
Graukeilspektrometrisch ermittelte Fallout-Nuklide

Energie (MeV)	0,09	0,13	0,23	0,36	0,50	0,66	0,76	1,46
Nuklid	^{147}Nd	^{144}Ce	^{132}Te	^{131}I	^{103}Ru	$^{137}\text{Ba}/$ ^{137}Cs	^{95}Zr	$^{40}\text{K}^*)$
Halbw. Zeit	11 d	285 d	3,13 d	8,1 d	40 d	30 a	65 d	$> 10^9$ a

*) Natürliches Nuklid.

von 0,51 MeV eine Streuung der Längenmessung von weniger als 0,5%. Die größte Unsicherheit bei der genannten Auswertemethode liegt in der Ermittlung der genauen Lage der γ -Linie selbst. Der Projektionsuntergrund ist kein reines Weiß, sondern durch die Rasterung des Millimeterpapieres farbig getönt, dadurch wird die Bestimmung der Linienmitte entschieden erschwert. Zur Beurteilung dieser Situation wurden mit den verschiedenen Eichstrahlern zahlreiche Auswertetests sowohl vom Verfasser selbst als auch von seinen Mitarbeitern durchgeführt. Das Ergebnis war, daß sich im Mittel die Energien auf etwa 3% genau bestimmen ließen und daß nur gelegentliche Abweichungen bis zu 5% auftraten. Diese Genauigkeit ist aber für die vorliegenden Untersuchungsaufgaben völlig ausreichend.

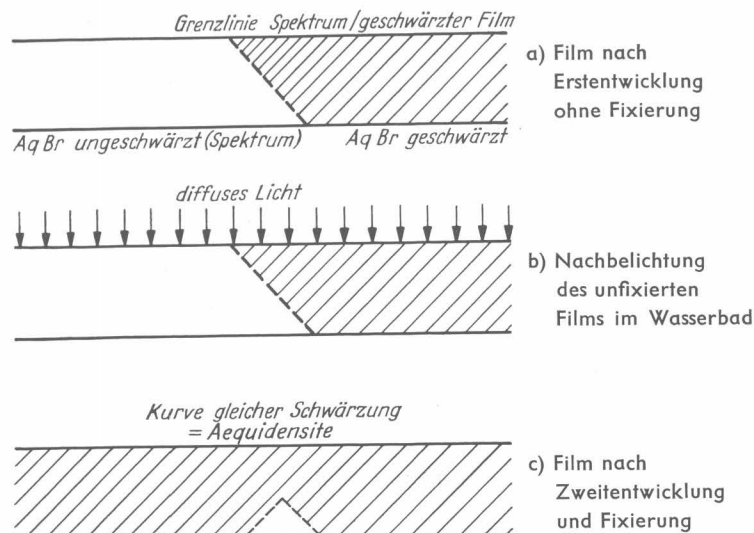


Bild 6: Das Äquidensitenverfahren (schematisch). Vergrößerter Vertikalschnitt durch die Emulsion einer Filmkopie der Graukeilaufnahme

Von A. Rakow [5] wurde das Äquidensitenverfahren als Methode zur „besseren, rationelleren Auswertung“ von Graukeilspektrogrammen vorgeschlagen. Das Grundprinzip der Herstellung einer Äquidensite (Kurve gleicher Schwärzung) aus einem Graukeilspektrogramm zeigt Bild 6. Von dem Originalspektrogramm wird in üblicher Weise ein vergrößertes Positiv auf Agfa-Printonfilm hergestellt. Diese Kopie wird nach der Entwicklung (a) nicht fixiert, sondern nach kurzer Zwischenwässerung mit einer experimentell zu ermittelnden Belichtungszeit diffus nachbelichtet (b) und erneut entwickelt. Nach jetzt erfolgreicher Fixierung ist die Übergangszone schwarz gegen weiß als mehr oder weniger scharfe Linie (Äquidensite) zu sehen (c). Mehrfaches Umkopieren des so erhaltenen Filmes erhöht die Schärfe der Äquidensite. In Bild 7 ist eine Gegenüberstellung der konventionellen Vergrößerung eines Graukeilspektrums mit der dazugehörigen Äquidensite zu sehen. Als Präparat für diese Aufnahme diente die in Bild 4 rechts unten dargestellte Niederschlagsprobe. Die einzelnen Gammalinien kommen besonders im niedrigen Energiebereich mit sehr guter Schärfe heraus. Diese Schärfe ließe sich, wie schon erwähnt, durch Umkopieren noch verbessern, allerdings würde sich dann der technische und damit zeitliche Aufwand für die Auswertung von Graukeilspektrogrammen erheblich erhöhen. Für eine schnelle, etwa im Verlauf einer Stunde durchzuführende vollständige Energieanalyse, wie es beim Einsatz der Graukeilspektrometrie für Strahlenschutz-Überwachungsaufgaben oftmals erforderlich ist, erscheint das Äquidensitenverfahren daher etwas umständlich, zumal eine wesentliche Erhöhung der Meßgenauigkeit gegenüber der obengenannten Auswertemethode nicht zu erwarten ist. Auf der anderen Seite ist aber eine Äquidensitendarstellung der Graukeilspektrogramme in Publikationen durchaus zu empfehlen, und der besondere Vorteil dieser Methode dürfte vielleicht in der Eichung der Aktivitätsachse zu suchen sein (siehe unten).

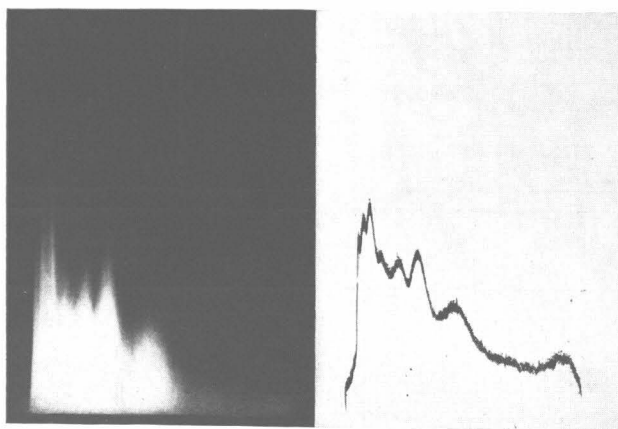


Bild 7: Vergleich zwischen Vergrößerung und Äquidensitendarstellung eines Graukeilspektrums

Auf eine mehr technische Frage der bildlichen Darstellung von Graukeilaufnahmen sei abschließend noch hingewiesen. In die auf übliche Weise vergrößerten Graukeilspektrogramme des Bildes 4 wurden Energieskalen mit Hinweis Pfeilen auf die im Spektrogramm ermittelten Nuklide einkopiert. Dies hat lediglich den Zweck einer besseren Anschaulichkeit veröffentlichter Bilder und ist technisch leicht durchführbar. Im vorliegenden Fall wurden die in beliebigem Maßstab auf weißem Karton gezeichneten Skalen verkleinert photographiert und davon seitenverkehrte 5×5-Diapositive hergestellt. Der erforderliche Vergrößerungsmaßstab der Graukeilspektrogramme wurde mit Hilfe eines Eichspek-

trums, etwa ^{22}Na , festgelegt, bei dem Vergrößerungsprozeß selbst wurde dann das Diapositiv schichtseitig auf das Vergrößerungspapier gelegt, so daß sich Spektrum und Skala gleichzeitig scharf aufkopieren lassen.

4. Versuch einer einfachen Aktivitätseichung

Wie im vorhergehenden Abschnitt näher ausgeführt wurde, ist eine Eichung der Energieskala eines Graukeilspektrogrammes leicht durchzuführen. Die Eichung der Aktivitätskoordinate erfordert einen etwas größeren Aufwand, da sich hier der photographische Positivprozeß nicht umgehen läßt, d. h. die Originalspektrogramme müssen erst auf ultrahartes Papier vergrößert oder auch im Äquidensitenverfahren dargestellt werden, ehe eine Auswertung erfolgen kann.

In einer Untersuchung von H. J. Born und H. Stärk [6] über neutronenaktivierte jodhaltige Papierchromatogramme wird die Anwendung des Graukeilverfahrens als empfindliche Methode zum quantitativen Nachweis von Spuren jodhaltiger Verbindungen vorgeschlagen. Die relativ kurzen Belichtungszeiten eines Graukeilspektrogrammes, die bei den in diesen Aktivierungsanalysen vorliegenden Aktivitäten von einigen $10^{-2} \mu\text{C}$ in der Größenordnung einer Minute liegen, erlauben die Untersuchung kurzlebiger Nuklide. In der oben genannten Arbeit wurde z. B. das Jod-Isotop ^{128}I mit einer Halbwertszeit von 25 Minuten untersucht.

Um aus der Höhe der γ -Linien die vorliegenden Aktivitäten quantitativ bestimmen zu können, muß die Extinktion des Graukeiles längs der Ordinate des Spektrums bekannt sein, wobei die Extinktion als natürlicher Logarithmus des reziproken Durchsichtigkeitsgrades des lichtabsorbierenden Mediums definiert ist und der Durchsichtigkeitsgrad seinerseits das Verhältnis zwischen austretendem und einfallendem Lichtstrom bedeutet. Im Falle linearer Extinktion ist die Aktivitätsskala logarithmisch, und man kann bei einer Eichung so vorgehen, daß man entweder die Extinktion des Graukeiles photometrisch bestimmt oder von vornherein von einer Verdünnungsreihe einer radioaktiven Eichsubstanz Graukeilspektrogramme aufnimmt und auswertet. Im folgenden wird eine solche Eichung beschrieben; sie erfolgte mit der γ -Linie 0,36 MeV des Jod-Isotopes ^{131}I (Halbwertszeit 8,1 Tage).

Von einer radioaktiven Kaliumjodid-Lösung wurde durch schrittweisen Zusatz von destilliertem Wasser eine 10-stufige Verdünnungsreihe hergestellt, wobei jede folgende Stufe die Hälfte der Aktivität der vorhergehenden Stufe besitzen sollte. Eine genaue Bestimmung der Aktivität dieser Verdünnungsschichten erfolgte allerdings im Strahlungsmeßgerät, da sich, bedingt durch Pipettierfehler, die Sollwerte nicht genau einstellen lassen. Der gesamte Aktivitätsbereich dieser Verdünnungsreihe erstreckte sich über nahezu 4 Dekaden von $1,2 \mu\text{C}$ bis $0,002 \mu\text{C}$. Für die in Bild 8 dargestellte Eichgerade I endete die Messung allerdings schon bei der Probe 6 ($0,13 \mu\text{C}$), aus Gründen, über die noch zu sprechen sein wird. Die Graukeilspektrogramme, die zu den Meßpunkten des Bildes 8 führten, wurden — wie zunächst ein orientierender Vorversuch ergeben hatte —

einheitlich 40 s exponiert. Die Aufnahmen erfolgten hintereinander auf einen Film, der wie eingangs angegeben entwickelt wurde. Negativseitig lagen somit gleiche Versuchsbedingungen vor. Die Lage des Graukeiles über dem Oszillographenschirm entsprach dabei dem Bild 2 in der bereits zitierten Arbeit von J. Schulz [4]. Für Wiederholungsmessungen ist diese Lage nicht kritisch, d. h. die Horizontalverschiebung des Oszillographenbildes kann in gewissen Grenzen variiert werden.

Für die Auswertung der Spektrogramme wurde im vorliegenden Fall nicht der etwas umständlichere Weg der Äquidensitendarstellung gewählt. Es zeigte sich nämlich, daß eine Vergrößerung auf extra hartes Papier mit harter Entwicklung Bilder ergab, bei denen der Übergang vom reinen Weiß des Spektrums in das tiefe Schwarz des Untergrundes über eine sehr schmale Grauzone erfolgte. Eine Längenbestimmung war somit mit einer Unsicherheit von etwa 2 ... 3% möglich. Die auf einem Film befindlichen Spektren der einzelnen Verdünnungsschichten wurden mit gleicher Vergrößerung (5-fach) und gleichen Lichtwerten auf Agfa-Brovira extra hart kopiert. Entwickelt wurde 60 s in Kodak D 24, wobei

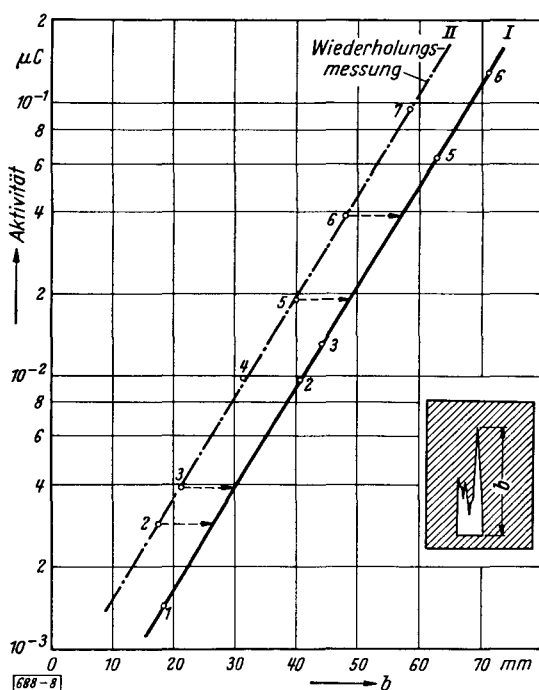


Bild 8: Eichung der Aktivitätsachse von Graukeilspektrogrammen mit dem Jod-Isotop ^{131}I

zur Einhaltung konstanter Entwicklungsbedingungen das Papier vor der Entwicklung kurzzeitig in destilliertem Wasser geweicht, die Entwicklungszeit mit der Uhr gestoppt und nach der Entwicklung ein Unterbrecherbad verwendet wurde. Die Linienhöhe konnte auf den getrockneten Kopien direkt durch Anlegen eines Maßstabes gemessen werden. Trägt man die so bestimmten Längen b über der Aktivität auf halblogarithmischem Papier auf, so ergibt sich, wie aus Bild 8 ersichtlich, eine exakte Gerade (Gerade I), aus der sich unbekannte Aktivitäten mit hinreichender Genauigkeit ablesen lassen. Korrekturen bezüglich des Nulleffektes sind bei Belichtungszeiten des Graukeilspektrogrammes in der Größenordnung einer Minute noch nicht erforderlich.

Wie bereits erwähnt, endete die Verdünnungsreihe nicht bei dem Präparat 6 ($0,13 \mu\text{C}$), sondern wurde noch um drei weitere Chargen bis zu einer Aktivität von $1,2 \mu\text{C}$ weitergeführt. Nimmt man von diesen drei Proben ebenfalls Graukeilspektrogramme mit 40 s Belichtungszeit auf und trägt die Auswertungsergebnisse in das Kurvenblatt ein, dann zeigen sich bei den höheren Aktivitäten Abweichungen vom Geradenverlauf, d. h. insgesamt ließen sich hier etwa $2^{1/2}$ Aktivitätsdekaden mit einer Graukeilaufnahme überstreichen. Man kann jedoch auch den höheren Aktivitätsbereich in den geraden Teil einer Eichkurve rücken, wenn die Belichtungszeit der Graukeilspektrogramme entsprechend reduziert wird, was sich durch diesbezügliche Versuche bestätigen ließ.

Von besonderer Wichtigkeit ist jetzt noch die Frage nach der Reproduzierbarkeit dieses Eichverfahrens, d. h. es ist die Entscheidung zu treffen, ob eine erstmalig festgelegte Gerade generelle Gültigkeit besitzt, wenn unter Einhaltung aller Versuchsbedingungen zu einem späteren Zeitpunkt weitere Aktivitätsbestimmungen vorgenommen werden sollen. Eine derartige Reproduzierbarkeit wurde festgestellt, wenn das Experiment unmittelbar im Anschluß an das erste wiederholt oder auch am nächsten Tag durchgeführt wurde. Im letzten Fall blieb das Gerät über Nacht eingeschaltet, an seinen Einstellungen wurde nichts geändert und auch die Einstellung der optischen Hilfsvorrichtungen blieb erhalten. Wurden jedoch die Geräte in der Zwischenzeit für andere Messungen mit völlig anderen Einstellungen verwendet, so ließen sich die Versuchsbedingungen nicht so reproduzieren, daß auch die neuen Meßpunkte auf der Geraden I liegen. Dies ist aus der Geraden II des Bildes 8 zu sehen. Die Messung dieser Geraden erfolgte 14 Tage nach der ersten Messung mit den gleichen Eichlösungen unter Berücksichtigung des Abklingens der Aktivität von ^{131}J . Die Punkte der Messung II liegen in sich wiederum exakt auf einer Geraden, müßten aber strenggenommen auf der Geraden I liegen (siehe gestrichelte Hinweis Pfeile), wenn die Versuchsbedingungen konstant geblieben wären.

Die Gründe für eine solche Abweichung dürften wohl in erster Linie in den photographischen Prozessen zu suchen sein. Jede Photometrie — und um eine solche handelt es sich auch hier — erfordert eine sehr hohe Genauigkeit in der Einhaltung aller optischer und photochemischer Bedingungen. Wird eine solche Photometrie nach zwei oder mehreren aufeinanderfolgenden photographischen Prozessen durchgeführt, dann addieren sich die einzelnen Fehler nach bestimmten Gesetzmäßigkeiten, und die vorliegenden Abweichungen werden verständlich. Inwieweit die Gründe auch in der Elektronik des Meßgerätes und der Sonde zu suchen sind, kann hier nicht entschieden werden, die Möglichkeit scheint aber in geringem Maße zu bestehen, denn auch bei Energieeichungen wurden ähnliche Feststellungen getroffen (siehe oben). Dieser Tatbestand bedeutet für die Anwendung der Graukeilmethode zur Aktivitätsbestimmung nur insofern eine geringfügige Einschränkung, als unmittelbar zu jeder Analyse unbekannter Aktivitäten eine Festlegung der Eichgeraden durch entsprechende Eichstandards durchzuführen ist, ein Verfahren, das z. B. in der Spektraloptik durchaus üblich ist. Innerhalb einer solchen Versuchsreihe können dann aber die elektronischen und photographischen Bedingungen als konstant angesehen werden, und die Bestimmung unbekannter Aktivitäten ist bei Voraussetzung einer exakten photographischen Dunkelkammerarbeit mit einem Fehler von wenigen Prozenten möglich.

Literatur

- [1] R. Tzschaschel: Gammaspektrometrische Untersuchung von Niederschlagsproben nach der Graukeilmethode. Atompraxis Jg. 7 (1961) Nr. 5, S. 170 ... 172.
- [2] Radikalaktivität in der Umgebung der Atomforschungsanlage des Landes Nordrhein-Westf. bei Jülich. Jahresbericht 1959 der Ges. zur Förderung d. kernphys. Forschung e. V. S/002.
- [3] K. Fränz: Ein- und Mehrkanal-Impulshöhenanalysatoren. Atompraxis Jg. 5 (1959) Nr. 10/11, S. 381...387.
- [4] J. Schulz: Graukeilspektroskopie mit dem Impulshöhenanalysator MS Str 531. Telefunken-Beschreibung AH/EP 1007 (1259 Hf-Eb).
- [5] A. Rakow: Ein Verfahren zur leichteren Auswertung von Graukeilspektrogrammen. Atomkernenergie Jg. 5 (1960) Nr. 3, S. 91...92.
- [6] H. J. Born und H. Stärk: Quantitative Bestimmung von Jod und jodhaltigen Verbindungen auf Papierchromatogrammen durch Neutronenaktivierung. Atomkernenergie Jg. 4 (1959) Nr. 78, S. 286...289.

Abrégé

Analyse qualitative et quantitative de rayons gamma de faible activité d'après la méthode à coin absorbant

Par R. Tzschaschel

L'analyse spectrométrique de radiations gamma de préparations de mesure ayant une très faible activité spécifique exige en général une dépense technique comme il s'en présente seulement dans les analyseurs à canaux multiples. On peut facilement concevoir que les lignes gamma de préparations faiblement actives disparaissent dans les variations de fond statistiques d'un spectre à canal unique.

L'analyseur de hauteur d'impulsions Telefunken MS Str 531 est un appareil dans lequel un système à canal unique ordinaire est combiné avec un analyseur à coin absorbant (fabriqué ici en type commercial pour la première fois). La méthode à coin absorbant, dont les principes physiques ont été exposés en détail ailleurs (voir notices bibliographiques [3] et [4]), donne des résultats absolument comparables à ceux de la spectrométrie à canaux multiples. Il est rapporté à ce sujet dans cet article.

L'auteur discute d'abord des mesures de comparaison entre la méthode à canal unique et la méthode à coin absorbant. Les mesures ont été effectuées sur des résidus d'évaporation d'eau de pluie et quelques échantillons de sol prélevés aux environs de l'installation de recherches nucléaires de Jülich. Tous les échantillons avaient une très faible activité (voir tableaux 1 et 2). Les figures 2 et 3 montrent une comparaison des spectres de ces échantillons obtenus par la méthode à canal unique et celle à coin absorbant. On remarque tout particulièrement les grandes différences de la durée de mesure des deux méthodes et le contenu d'information beaucoup plus grand des spectres obtenus avec le coin absorbant, que l'on aperçoit déjà au bout du plus petit temps d'exposition d'une demi-heure. Ce fait est bien compréhensible parce qu'un spectre de coin absorbant est, en principe, un spectre à canaux multiples produit par des moyennes optiques. Le troisième tableau montre une énumération des «fallout-nuclides» déterminés dans les spectrogrammes de coin absorbant.

Dans la troisième partie de l'article, l'auteur rapporte sur l'évaluation de spectrogrammes de coin absorbant, c'est-à-dire l'étalonnage de l'axe d'énergie et une reproduction convenable du spectre dans les publications imprimées. La figure 5 montre une famille de courbes, mesurée avec utilisation de différentes préparations-étalon (voir l'ordonnée). Comme paramètre des courbes est utilisée la haute tension au multiplicateur d'électrons secondaires de la sonde à scintillation en cas d'amplification d'entrée constante de l'appareil.

Si des spectres de coin absorbant devaient être imprimés dans une publication scientifique, il est indiqué, pour des raisons de clarté, d'imprimer les échelles d'énergie avec des flèches désignant les nuclides déterminés, comme c'est le cas sur la figure 4. La méthode dite «des équidensités» permet de représenter le spectre de coin absorbant dans le genre d'un spectre à canal unique ou à canaux multiples décrit (fig. 7).

Dans la dernière partie de l'article, l'auteur rapporte sur l'étalonnage de l'axe d'activité d'un spectre de coin absorbant. Cet étalonnage a été effectué avec l'iodisotope ^{131}I , dont un choix d'échantillons d'activités échelonnées était disponible. On s'en est servi pour faire des photographies de coin absorbant et mesurer la hauteur des lignes gamma. Les résultats ainsi obtenus (fig. 8) montrent, sur une échelle demi-logarithmique, une stricte linéarité entre l'activité et la hauteur des lignes gamma.

Comme conclusion, on peut dire ce qui suit au sujet d'une estimation de la précision des étalonnages de l'énergie et de l'activité: L'utilisation du spectromètre à coin absorbant exige un travail photographique très exact, comme celui auquel le physicien est habitué en spectroscopie optique. Dans ce cas, on peut déterminer avec une précision d'environ 3 à 5% les énergies de nuclides inconnus et les activités de nuclides déterminés.

Abridgment

Qualitative and Quantitative Analysis of Low-Activity Gamma Rays by the Grey-Wedge Method

By R. Tzschaschel

In general the spectrometric analysis of gamma samples of a low specific activity necessitates complex equipment as is only provided in multi-channel analysers. Obviously the gamma lines of weakly active samples often disappear in the statistic background variation of a single-channel spectrum.

The Telefunken Pulse Height Analyser MS Str 531 is an equipment combining a customary single-channel system with a grey-wedge analyser (produced commercially for the first time). The grey-wedge method, whose physical fundamentals have been described in detail in other literature (cf. literature references [3] and [4]), supplies results quite comparable with those of four-channel spectrometry, which is described in this paper.

At first comparative measurements between the single-channel and the grey-wedge method are discussed. The samples measured are total solids from rain water and some soil samples from the vicinity of the nuclear research centre at Jülich. All samples had a very low activity (cf. tables 1 and 2). In Figs. 2 and 3 the spectra of the single-channel and grey-wedge methods are compared. Particularly striking are the great differences in the measuring time in the two methods and the much higher content of information provided by the grey-wedge spectra, which can even be recognized at the shortest exposure time of half an hour. The latter is quite understandable because in principle the grey-wedge spectrum is a multi-channel spectrum produced with optical means. The third table gives a summary of the fallout nucleides ascertained in the grey-wedge spectrograms.

In the third paragraph of the present paper the evaluation of the grey-wedge spectrograms, i. e. the calibration of the energy axis and a suitable method of printing the spectrum, is described. Fig. 5 shows a family of calibration curves that were measured using various samples (cf. ordinate). The HT across the secondary electron multiplier of the scintillation detector at constant equipment input amplification is the parameter of the curves.

If grey-wedge spectra shall be printed in a scientific publication it is recommended, for reasons of clarity, to print the energy scales with arrows pointing to the nucleides determined, as has been done in Fig. 4. The so-called "equi-density method" permits representing the grey-wedge spectrum as a kind of written single-channel or multi-channel spectrum (Fig. 7).

In the final paragraph the calibration of the activity axis of a grey-wedge spectrum is described. Calibration was effected with the iodine isotope ^{131}I of which various samples at different activities were available. Grey-wedge recordings were made and the height of the gamma lines measured. In the semi-logarithmic scale the results obtained in this manner (Fig. 8) show strict linearity between the activity and the height of the gamma lines.

As regards estimating the accuracy of energy and activity calibrations, the following should be mentioned in conclusion: in principle handling the grey-wedge spectrometer necessitates highly accurate photography, to which the physicist is accustomed from spectrum optics. If this accuracy is given, then the energies of unknown nucleides and the activities of definite nucleides can be ascertained with an accuracy of approximately 3 to 5%.